

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 62-030147

(43)Date of publication of application : 09.02.1987

(51)Int.Cl. C08L 69/00  
C08K 3/16  
C08K 3/24  
H01B 1/20  
H01M 6/18  
H01M 10/36

(21)Application number : 60-167737

(71)Applicant : NISSAN CHEM IND LTD

(22)Date of filing : 31.07.1985

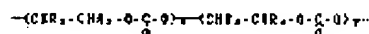
(72)Inventor : KOUTOMI NOBUAKI  
KOBAYASHI TAKASHI

## (54) ION CONDUCTIVE HIGH POLYMER COMPLEX

### (57)Abstract:

PURPOSE: A transparent ion conductive high polymer complex, obtained by incorporating a specific polyalkylene carbonate with a specific metal salt and organic solvent, having high stable ion conductivity and improved processability and capable of optionally adjusting the mechanical strength.

CONSTITUTION: An ion conductive high polymer complex obtained by incorporating a polyalkylene carbonate expressed by the formula (R1, R2, R3 and R4 are substituent group selected from H, 1W5C alkyl and phenyl; X and Y indicate mol fraction, and X is 0W1; Y is 0W1; X+Y=1) with one or two or more metal salts selected from Groups I and II of the periodic table and an organic solvent capable of dissolving the above-mentioned two components. Polyethylene carbonate having 10° C glass transition point, etc., may be used as the polyalkylene carbonate expressed by the formula. LiClO4, etc., may be used as the metal salts.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

## ⑫ 公開特許公報(A)

昭62-30147

⑤ Int. Cl.<sup>4</sup>

C 08 L 69/00  
 C 08 K 3/16  
           3/24  
 H 01 B 1/20  
 H 01 M 6/18  
           10/36

識別記号

CAH  
 CAH

庁内整理番号

8118-4J

⑬ 公開 昭和62年(1987)2月9日

Z-8222-5E

E-7239-5H

A-8424-5H

審査請求 未請求 発明の数 1 (全3頁)

⑭ 発明の名称 イオン伝導性高分子複合体

⑯ 特 願 昭60-167737

⑰ 出 願 昭60(1985)7月31日

⑱ 発 明 者 向 富 宣 昭 市原市五井南海岸11番地1 日産化学工業株式会社高分子研究所内

⑲ 発 明 者 小 林 孝 史 市原市五井南海岸11番地1 日産化学工業株式会社高分子研究所内

⑳ 出 願 人 日産化学工業株式会社 東京都千代田区神田錦町3丁目7番地1

*M=3 Not at less 3 C*

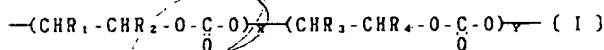
## 明細書

## 1. 発明の名称

イオン伝導性高分子複合体

## 2. 特許請求の範囲

一般式 (I) で表される



(R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>は水素原子、炭素数1～5のアルキル基及びフェニル基から選ばれる置換基であり、X及びYはモル分率を示しXは0～1、Yは0～1の数で且つX+Y=1である。)

ポリアルキレンカーボネートと周期律表第Ⅰ族及び第Ⅱ族から選ばれる1種又は2種以上の金属塩並びに上記ポリアルキレンカーボネート及び金属塩を溶解する有機溶媒からなるイオン伝導性高分子複合体。

## 3 発明の詳細な説明

## (イ) 産業上の利用分野

本発明は、イオン伝導性高分子複合体に関するものであり、詳しくは安定な高いイオン伝導

性を有し且つ透明で加工性に優れ、機械的性質が任意に調節可能なイオン伝導性高分子複合体に関するものである。

## (ロ) 従来の技術

イオン伝導性物質としてはLiClO<sub>4</sub>、LiAlCl<sub>4</sub>、LiBF<sub>4</sub>、KPF<sub>6</sub>、NaPF<sub>6</sub>及びLiAsF<sub>6</sub>等をプロピレンカーボネート、γ-ブチロラクトン、テトラヒドロフラン及びジメトキシエタン等に溶解した電解質溶液やRbAg<sub>4</sub>I<sub>5</sub>、Na-β-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>及びZrO<sub>2</sub>等の固体電解質等が知られている。

又、特開昭57-143356号公報では比誘電率が4以上の有機高分子化合物、比誘電率が10以上の有機溶媒及び金属塩からなるイオン伝導性固体組成物が提案されている。

## (ハ) 発明が解決しようとする問題点

上述の電解質溶液は、リチウム電池等で実用化されているが、溶液を使用する為漏洩の問題は避けられない。

固体電解質は真空蒸着法、スパッタリング法及びCVD法等の特殊な方法で製造される為高価で

あり、無機物という性質上成形加工性に劣る欠点がある。

又、固体電解質は一般に高温でのみ作動する為用途が限定される。

特開昭57-143356号公報の系は、有機溶媒が必須構成要件である為有機溶媒の漏洩及び揮散による導電率の変化は避けられない。

又、有機溶媒濃度は導電率との兼合いから一義的に決まる為、イオン伝導性高分子複合体の機械的物性を有機溶媒濃度で調節する事は不可能である。

## (二) 問題点を解決するための手段

本発明者らは、上述の欠点を解決すべく鋭意努力検討の結果、一般式(1)のポリアルキレンカーボネートが $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiAlCl}_4$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{KPF}_6$ 、 $\text{NaPF}_6$ 、及び $\text{LiAsF}_6$ 等の金属塩の解離を促進し且つ安定な複合体を形成して高いイオン伝導を発現する事並びにポリアルキレンカーボネート及び上記金属塩を溶解する有機溶媒を配合するとイオン伝導性高分子複合体の機械物性を任意に調節出来る

$\text{LiBF}_4$ 、 $\text{KPF}_6$ 、 $\text{NaPF}_6$ 、 $\text{LiAsF}_6$ 、 $\text{Ba}(\text{ClO}_4)_2$  及び  $\text{ZnI}_2$ 等が挙げられる。

本発明のイオン伝導性高分子複合体の導電率は金属塩配合量に比例して高くなるが、金属塩の配合量は一般式(1)のポリアルキレンカーボネート100重量部に対して1~100重量部が望ましい。

金属塩の配合量が1重量部未満であると充分な導電性は得られず、又金属塩の配合量が100重量部を越えると得られるイオン伝導性高分子複合体が脆くなり用途によっては好ましくない。

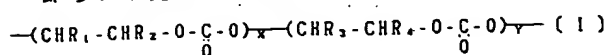
本発明の一般式(1)のポリアルキレンカーボネート及び周期律表第I族及び第II族から選ばれる金属塩を溶解する有機溶媒の具体例としては、アセトン、酢酸エチル、テトラヒドロフラン及びプロピレンカーボネート等が挙げられる。

有機溶媒の配合量は、一般式(1)のポリアルキレンカーボネート100重量部に対して1~100重量部が望ましい。

有機溶媒の配合量が1重量部未満であると顕著

事を見出し本発明を完成するに至った。

即ち、本発明は一般式(1)で表される



( $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 、 $\text{R}_4$ は水素原子、炭素数1~5のアルキル基及びフェニル基から選ばれる置換基であり、 $x$ 及び $y$ はモル分率を示し $x$ は0~1、 $y$ は0~1の数で且つ $x+y=1$ である。)

ポリアルキレンカーボネートと周期律表第I族及び第II族から選ばれる1種又は2種以上の金属塩並びに上記ポリアルキレンカーボネート及び金属塩を溶解する有機溶媒からなるイオン伝導性高分子複合体に関するものである。

本発明の一般式(1)のポリアルキレンカーボネートの具体例としては、ガラス転移点が10℃のポリエチレンカーボネート及びガラス転移点が32℃のポリプロピレンカーボネート等が挙げられる。

本発明の周期律表第I族及び第II族から選ばれる金属塩の具体例としては、 $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiAlCl}_4$ 、

な機械物性の向上は認められず、無添加の場合と差はあまりない。

又、有機溶媒の配合量が100重量部を越えると得られるイオン伝導性高分子複合体は液体状になってしまう。

本発明のイオン伝導性高分子複合体は、例えば一般式(1)のポリアルキレンカーボネートと周期律表第I族及び第II族から選ばれる1種又は2種以上の金属塩を上記ポリアルキレンカーボネート及び金属塩を溶解する有機溶媒に均一に溶解し、キャスト法で成膜後有機溶媒含有量を所定量に調節する事により容易に製造する事が出来る。

本発明のイオン伝導性高分子複合体の用途としては、例えば一次電池、二次電池、センサー及びエレクトロクロミックディスプレイ等が挙げられる。

## (ホ) 発明の効果

本発明のイオン伝導性高分子複合体は、一般式(1)のポリアルキレンカーボネートが周期律表第I族及び第II族から選ばれる1種又は2種以上

の金属塩の解離を促進し大部分の金属をイオンとして存在させ且つ安定な複合体を形成する為、高いイオン伝導性を示す。

又、本発明のイオン伝導性高分子複合体は高い透明性を有し且つ固体状である為、電解質が漏洩、揮散する事はない。

更に、有機溶媒を含有する高分子複合体である為、特に賦形性に優れ成形性及び後加工性も良い。

例えば、本発明のイオン伝導性高分子複合体上に電極を形成する場合、電極との接触状態が非常に良好であり界面に起因する抵抗が低減する利点がある。

本発明のイオン伝導性高分子複合体の機械物性は、一般式〔I〕のポリアルキレンカーボネートの置換基 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ 及び $X$ 及び $Y$ のモル分率を適宜選択しガラス転移点等を調節する事により或る程度調節する事も出来るが、一般式〔I〕のポリアルキレンカーボネート及び周期律表第Ⅰ族及び第Ⅱ族から選ばれる金属塩を溶解する有機溶媒を含有させる事により機械物性を容易、

且つ任意に調節する事が出来る。

#### (へ) 実施例

次に実施例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

##### 実施例 1

ポリプロピレンカーボネート 1 g、 $LiClO_4 \cdot 0.1 g$  及びプロピレンカーボネート 5 g を混合攪拌し均一溶液とした。

この溶液をステンレス板上にキャスト後、減圧下 90℃ で 4 時間乾燥を行い、プロピレンカーボネート配合量が 0.5 g で厚さ 1.3 mm の透明な固体状イオン伝導性高分子複合体を得た。

このイオン伝導性高分子複合体上にステンレス製の主電極及びガード電極を形成後、イオンの分極を避ける為インピーダンス法を採用し周波数を  $10^2 \sim 10^5$  Hz まで変化させ導電率の測定を行いCole-Cole プロットにより導電率を算出した。導電率は  $5.6 \times 10^{-3} S \cdot cm^{-1}$  であった。

特許出願人 日産化学工業株式会社